

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-257450

(43)Date of publication of application : 12.09.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/04

H01M 8/12

(21)Application number : 2002-056774

(71)Applicant : RI KINZO

(22)Date of filing : 04.03.2002

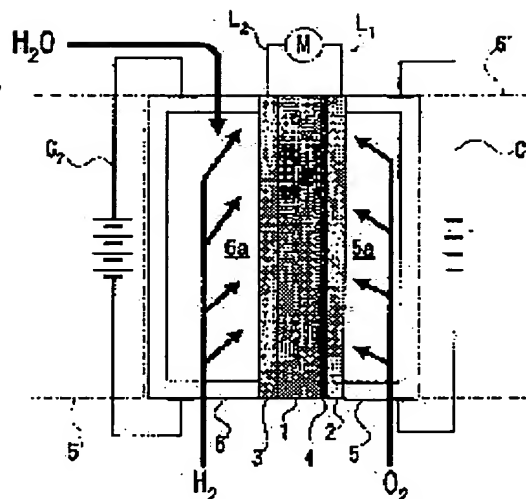
(72)Inventor : RI KINZO  
OKADA SEIJI  
KATO TAIZO

## (54) FUEL CELL

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a solid oxide type fuel cell capable of operating at a low temperature more than a conventional fuel cell.

**SOLUTION:** This fuel cell is provided with an electrolyte layer 1, a first electrode 2 provided on a one face side of the electrolyte layer 1, a first support body 5 provided by opposing to the electrolyte layer 1 across the first electrode 2 to form a clearance 5a for filling oxygen between the first electrode 2 and it, a second electrode 3 provided on the other face side of the electrolyte layer 1 and provided with a function for ionizing hydrogen, and a second support body 6 provided by opposing to the electrolyte layer 1 across the second electrode 3 to form a clearance 6a for filling water and hydrogen between the second electrode 3 and it.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

**\* NOTICES \***

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] Said 1st electrode is inserted so that the opening for being filled up with oxygen may be formed between an electrolyte layer, the 1st electrode prepared in the whole surface side of this electrolyte layer, and this 1st electrode. Between the 1st base material formed so that it might counter with said electrolyte layer, the 2nd electrode equipped with the function which was prepared in the side on the other hand and which ionizes the hydrogen of said electrolyte layer, and this 2nd electrode It is the fuel cell which sandwiches said 2nd electrode, possesses the 2nd base material formed so that it might counter with said electrolyte layer, and is characterized by said electrolyte layer consisting of palladium-peta-alumina further so that the opening for being filled up with water and hydrogen may be formed.

[Claim 2] An electrolyte layer is a fuel cell according to claim 1 characterized by obtaining by carrying out the forcible permutation of the sodium which is the component of sodium-peta-alumina with an electrolytic process at palladium.

[Claim 3] The fuel cell according to claim 1 or 2 with which the metal membrane which consists of palladium is characterized by being made to come to intervene between an electrolyte layer and the 1st electrode.

[Claim 4] The 1st base material and/or 2nd base material are a fuel cell according to claim 1 to 3 characterized by consisting of ceramics equipped with the property that generate heat by impressing an electrical potential difference, and electric resistance increases with the rise of temperature.

[Claim 5] Water is a fuel cell according to claim 1 to 4 characterized by being constituted and becoming in the condition of a steam so that the opening between the 2nd base material and the 2nd electrode may be filled up.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

**JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to a fuel cell, i.e., the electrochemical generator constituted so that power might be generated by supplying an active material continuously from the outside.

[0002]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] A fuel cell is divided roughly and classified into five, alkaline fuel cells (AFC), a phosphoric acid fuel cell (PAFC), a fused carbonate fuel cell (MCFC), a polymer electrolyte fuel cell (PEFC), and a solid acid ghost mold fuel cell (SOFC). Among these, especially the last thing is capturing the big spotlight from the reasons of excelling in generating efficiency, and research towards full-scale utilization is promoted wholeheartedly.

[0003] Now, this solid acid ghost mold fuel cell has structure whose electrolyte layer which consists of special ceramics, such as fully stabilized zirconia which is a solid acid ghost, generally was pinched with two electrodes from right and left. these two electrodes -- on the other hand -- namely, the hydrogen which is a fuel at a fuel electrode -- moreover, if the oxygen which is an oxidizer is supplied, the electrode, i.e., the oxygen pole, of another side, by the catalysis which an electrode has, oxygen is ionized, and this oxygen ion will penetrate an electrolyte layer and will result in a fuel electrode. And further, oxygen ion meets with a hydrogen ion, and reacts there, and water produces it. Under the present circumstances, since an electron moves to an oxygen pole from a fuel electrode, a current arises. This is the structure which a solid acid ghost mold fuel cell makes generate power.

[0004] However, there were the following troubles in such a solid acid ghost mold fuel cell (only henceforth a fuel cell). That is, although the fuel cell of a conventional type will carry out the temperature up of the electrolyte layer to necessary temperature by the time starting of operating temperature is attained very highly therefore with about 900-1000 degrees C that is, most time amount is needed. Therefore, startability is remarkably bad. Moreover, an electrolyte layer must always be maintained at this temperature also during a generation of electrical energy with a natural thing, and huge energy is wasted. Furthermore, since the thermal protection system which can bear an elevated temperature must be adopted, it will become as a whole very large-scale.

[0005] Therefore, the technical problem which this invention tends to solve is offering the fuel cell of the solid acid ghost mold which can operate at low temperature rather than an old thing.

[0006]

[Means for Solving the Problem] In order to solve the above-mentioned technical problem, this invention person thought that what consisted of different ingredients from the former as an electrolyte layer was indispensable. And this invention person reached further the conclusion that it was indispensable to constitute so that not oxygen ion but a hydrogen ion may penetrate an electrolyte layer.

[0007] By the way, as an electrolyte layer in the fuel cell of a solid acid ghost mold, the special thing made from a ceramic called peta-alumina is known, and when this is used, not oxygen ion but a cation, for example, a hydrogen ion, comes to penetrate the inside of an electrolyte layer. Moreover, operating temperature serves as a quite low value from the case where fully stabilized zirconia is used. Generally this peta-alumina is the matter in which an aluminum oxide and sodium oxide carried out the chemical bond, and that concrete chemical formula is  $3\text{Na}_2\text{O} \cdot 16\text{aluminum } 2\text{O}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{O} \cdot 11\text{aluminum } 2\text{O}_3$ , etc. Therefore, it is usually called sodium-peta-alumina.

[0008] But, there is fault also in the fuel cell constituted using the electrolyte layer which consists of this sodium-peta-alumina too. That is, the fuel cell with which this structure was adopted is lacking in responsibility. Since this has the very slow rate to which a hydrogen ion moves the inside of the electrolyte

layer made from peta-alumina, in other words, it is for requiring most time amount, although a hydrogen ion penetrates an electrolyte layer. So, even if it is going to increase an output suddenly, supply of a hydrogen ion to the oxygen pole may not fulfill demand, and sufficient responsibility is not demonstrated.

[0009] this invention person traced that what is necessary was just to supply hydrogen to a fuel electrode with water further using what promoted research further in view of such the actual condition, consequently consisted of palladium-peta-alumina as an electrolyte layer. Thus, if constituted, a hydrogen ion will be temporarily stored in palladium equipped with high hydrogen absorption capacity, and the very high condition of hydrogen ion concentration will always be maintained for a part with the interior of an electrolyte layer near a fuel electrode. However, on the other hand, it will be in the condition that hydrogen ion concentration is very low near the oxygen pole, consequently the difference of elevation (shade difference) of very big hydrogen ion concentration will produce it inside an electrolyte layer.

[0010] In the fuel cell as which this structure was adopted, this shade difference serves as motive power, and the rapid migration of a hydrogen ion of it is attained. Even when it is going to increase an output suddenly especially, it conforms to it and the rapid supply only of the required hydrogen ion can be carried out at an oxygen pole side. That is, the responsibility which the situation which is not desirable that supply of a hydrogen ion to the oxygen pole did not fulfill demand did not arise, and was excellent is demonstrated.

[0011] And the electrolyte layer which consisted of palladium-peta-alumina makes a hydrogen ion (in fact  $H_3O^+$ ) penetrate with the fuel cell of this structure compared with an old thing at very low about temperature, for example, 300-400 degrees C, with this. Therefore, the time amount taken to carry out the temperature up of the electrolyte layer to necessary temperature by the time starting becomes possible that is, is shortened remarkably, and startability improves sharply. Moreover, needless to say, since it is not necessary to maintain an electrolyte layer at an elevated temperature also during a generation of electrical energy, the energy which incubation of an electrolyte layer takes is slight. And since the heat-resistant function for bearing an elevated temperature is still more unnecessary, the whole structure can be made very simple. Thus, rather than an old thing, the solid acid ghost mold fuel cell concerning this invention can operate at low temperature, and does various outstanding effectiveness so.

[0012] In addition, when this structure is adopted, the interior of an electrolyte layer is in the condition of always having been saturated with the water molecule, and in other words, the electrolyte layer is in the condition of having always become wet. For this reason, a hydrogen ion becomes the form combined with the water molecule, i.e.,  $H_3O^+$ , and penetrates the inside of an electrolyte layer. Then, it separates into a hydrogen ion and a water molecule again by the oxygen pole side, among these the former combines with oxygen, and this  $H_3O^+$  becomes water. And the flow of the electron which goes to an oxygen pole arises from a fuel electrode in this process. That is, a fuel cell creates power.

[0013] This invention is made based on such knowledge. The above-mentioned technical problem Said 1st electrode is inserted so that the opening for being filled up with oxygen may be formed between an electrolyte layer, the 1st electrode prepared in the whole surface side of this electrolyte layer, and this 1st electrode. Between the 1st base material formed so that it might counter with said electrolyte layer, the 2nd electrode equipped with the function which was prepared in the side on the other hand and which ionizes the hydrogen of said electrolyte layer, and this 2nd electrode Said 2nd electrode is inserted and the 2nd base material formed so that it might counter with said electrolyte layer is provided so that the opening for being filled up with water and hydrogen may be formed. Further said electrolyte layer It is solved by the fuel cell characterized by consisting of palladium-peta-alumina.

[0014] In addition, especially as an electrolyte layer which constitutes the fuel cell concerning this invention, what was obtained by carrying out the forcible permutation of the sodium which is the component of sodium-peta-alumina with an electrolytic process at palladium can be used. Moreover, actuation effectiveness and in order to raise responsibility further especially, it is desirable that the metal membrane which functions as increasing, the difference of elevation, i.e., the shade difference, of a hydrogen-ion density, in the fuel cell concerning this invention and which consists of palladium is made to come to intervene between an electrolyte layer and the 1st electrode (oxygen pole). In order that a hydrogen ion may penetrate the inside of the metal membrane which consists of this palladium in an instant, the part which touched this metal membrane in the electrolyte layer is always maintained at the condition that hydrogen ion concentration is low to the degree of pole, during actuation of a fuel cell. Consequently, a still bigger shade difference than the case where it is not made to intervene will arise.

[0015] Furthermore, as for the 1st base material and/or 2nd base material, in the fuel cell of this invention, it is desirable to consist of ceramics,  $BaTiO_3$ ,  $ZrO_2$ ,  $SiC$ ,  $MoSi_2$ ,  $LaCrO_3$ , etc., equipped with the property (positive) that generate heat by impressing an electrical potential difference, and electric resistance increases

with the rise of temperature. [ for example, ] By using such an ingredient, the 1st base material and/or 2nd base material can be burdened with a role of a heater, and a rapid temperature up system is done by this in them. That is, a fuel cell becomes what possesses a rapid temperature up system inside itself. Consequently, time amount until the further simplification and the further miniaturization of equipment structure are not only realized, but equipment reaches the temperature whose actuation is attained can be shortened. In addition, water is in the condition of a steam and, as for the fuel cell concerning this invention, it is desirable for it to be constituted and to become so that the opening between the 2nd base material and the 2nd electrode may be filled up.

[0016]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, 1 operation gestalt of this invention is concretely explained using drawing 1 . In addition, this drawing is an outline sectional view showing the structure of the fuel cell concerning this operation gestalt.

[0017] The fuel cell (henceforth this fuel cell) concerning this operation gestalt is replaced with the conventional internal combustion engine which a fossil fuel is burned and gets power, and is used as a source of power of a car. That is, the electrical energy obtained by this fuel cell (fuel cell stack which is the aggregate correctly) will be supplied to the motor for a wheel drive via a controller etc. In addition, the purpose for spending of this fuel cell is not limited to such an example with a natural thing.

[0018] This fuel cell is the electrochemical generator assembled so that power might be generated by supplying continuously the hydrogen and oxygen which are an active material from the outside. What reformed and obtained hydrocarbon system fuels, such as a gasoline, and LNG (liquefied natural gas), LPG (liquefied petroleum gas), as hydrogen supplied to this fuel cell is mentioned. [ a methanol, and ] However, when not asking especially points, such as cost, and the ease of treatment, safety, the pure hydrogen filled up with the liquefaction condition or the squeezing condition into the container may be used. Moreover, the oxygen which is another active material uses the thing in air. Therefore, when it says correctly, air will be supplied to this fuel cell with the hydrogen which is a fuel, and the oxygen which is the component of air will react chemically to it with hydrogen. However, also about oxygen, as long as it is with the need, the pure thing with which the container was filled up may be used.

[0019] Now, this fuel cell has the electrolyte layer 1, the 1st electrode 2 prepared in the whole surface side of this electrolyte layer 1, and the 2nd electrode 3 of the electrolyte layer 1 of the same Lycium chinense prepared in the side on the other hand as a main component. Between the electrolyte layer 1 and the 1st electrode 2, the metal membrane 4 which consists of palladium is made to intervene especially.

[0020] Furthermore, this fuel cell possesses the 1st base material 5 and 2nd base material 6. Among these, about the 1st base material 5, the 1st electrode 2 is inserted, and it is prepared so that it may counter with the electrolyte layer 1, so that opening 5a for being filled up with oxygen may be formed between the 1st electrode 2 of the above. On the other hand, the 2nd electrode 3 is inserted, and it is prepared so that it may counter with the electrolyte layer 1, so that opening 6a for being filled up with water and hydrogen may be formed between the 2nd electrode 3 of the above about the 2nd base material 6.

[0021] Both these 1st base materials 5 and the 2nd base material 6 are constituted from barium titanate etc. by the positive ceramics and the concrete target (of course, only either may consist of positive ceramics). from such an ingredient -- it can do -- a top -- \*\*\*\* -- the 1st base material 5 and 2nd base material 6 which are generate heat by an electrical potential difference being impressed by a feeder circuit C1 and the feeder circuit C2, respectively, and electric resistance increases with the rise of temperature. Therefore, the temperature of the 1st base material 5 and the 2nd base material 6, therefore the temperature of this whole fuel cell are kept almost constant by a certain within the limits. With this operation gestalt, since the 1st base material 5 and 2nd base material 6 were burdened also with a role of a heater, they consisted of positive ceramics. However, needless to say, the 1st base material 5 and 2nd base material 6 may consist of what kind of ingredients (insulating material).

[0022] Now, although the electrolyte layer 1 plays the role which makes a hydrogen ion penetrate from the left to the right among drawing, what consisted of palladium-peta-alumina is used for it as this electrolyte layer 1 here. Furthermore, if it says in detail, with this operation gestalt, what was obtained by carrying out the forcible permutation of the sodium which is the component of very common sodium-peta-alumina as this electrolyte layer 1 with an electrolytic process at palladium is used.

[0023] Next, although the 1st electrode 2 is made to intervene as mentioned above between the electrolyte layer 1 and the 1st base material 5, the lead wire L1 for taking out the electrical energy produced by the chemical reaction is further connected to it. That is, the 1st electrode 2 functions as a negative electrode. In addition, this operation gestalt constitutes this 1st electrode 2 from the porous material which uses platinum

as main components. Moreover, it constitutes from a porous material which uses platinum as main components, and hydrogen and water enable it to penetrate the interior freely also about the 2nd electrode 3. And the 2nd electrode 3 is equipped with the catalyst function which ionizes hydrogen so that platinum may be known also from considering as a principal component. Furthermore, the lead wire L2 for taking out the electrical energy produced by the chemical reaction is connected to the 2nd electrode 3. That is, the 2nd electrode 3 functions as a positive electrode.

[0024] In addition, water consists of these operation gestalten so that opening 6a between the 2nd base material 6 and the 2nd electrode 3 may be filled up with the condition of a steam. That is, the heating evapotranspiration equipment which is not illustrated is connected to this fuel cell, and water is made to evaporate beforehand by making it go via it, namely, it enables it to supply as a condition of a steam.

[0025] In addition, in fact, since many fuel cells (cel) are accumulated, the 1st base material 5 will be in the condition of having touched base material (2nd base material) 6' with which other fuel cells shown with an alternate long and short dash line are equipped, among drawing. On the other hand, the 2nd base material 6 will also be in the condition of having touched base material (1st base material) 5' with which other fuel cells shown with an alternate long and short dash line are equipped, among drawing.

[0026] This constituted fuel cell functions as follows like the above. In addition, the heater function (rapid temperature up system) of the 1st base material 5 which mentioned the electrolyte layer 1 above to this although the temperature up of the whole fuel cell needed to be especially carried out to predetermined temperature, for example, 300-400 degrees C, in advance of supply of an active material or water, and the 2nd base material 6 is used. That is, by impressing an electrical potential difference to the 1st base material 5 and 2nd base material 6, itself is made to generate heat and the electrolyte layer 1 this pinched by the 1st base material 5 and 2nd base material 6 is heated to predetermined temperature. However, this condition is always maintained also during a generation of electrical energy.

[0027] In this way, if a dead work is completed and it will continue, the hydrogen and oxygen (in fact air) which are an active material, and water (steam) are supplied to this fuel cell. Among these, although hydrogen is ionized by the catalysis which the 2nd electrode 3 has and it results in the electrolyte layer 1, most amount is temporarily stored by the palladium which constitutes this electrolyte layer 1. Moreover, the water supplied to coincidence also penetrates the 2nd electrode 3, and results in the electrolyte layer 1, and a predetermined amount is held there. That is, water plays the role which makes the electrolyte layer 1 become wet moderately. On the other hand, although hydrogen is ionized by the catalysis which the 2nd electrode 3 has as mentioned above, hydrogen emits an electron in that case. And this flows into the external flow way (external circuit) constituted using the lead wire L2 connected to the 2nd electrode 3.

[0028] By the way, if a hydrogen ion is supplied one after another from the 2nd electrode 3, it replaces the hydrogen ion currently beforehand stored in the electrolyte layer 1. Since in other words the electrolyte layer 1 is in the condition of having always become wet, a hydrogen ion becomes the form combined with the water molecule, i.e.,  $H_3O^+$ , continues the inside of the electrolyte layer 1 further, and penetrates a metal membrane 4. Then, this  $H_3O^+$  is again divided into a hydrogen ion and a water molecule by the 1st electrode (oxygen pole) 2 side. And it meets with oxygen, and the electron further supplied via the lead wire L1 connected to the 1st electrode 2, i.e., the above-mentioned external flow way, (external circuit) is connected with this, consequently water (steam) produces this hydrogen ion with remarkable generation of heat.

[0029] Although such a single string reacts chemically, it accompanies and an electron moves toward the 1st electrode 2 on an external flow way from the 2nd electrode 3, this means that a current flows on an external flow way needless to say. Therefore, this fuel cell (fuel cell stack which is the aggregate correctly) operates the electrical machinery and apparatus (this operation gestalt motor) M connected to it with high energy efficiency.

[0030] Thus, with this operation gestalt, hydrogen was further supplied to the 2nd electrode 3 with water as an electrolyte layer 1 using what consisted of palladium-peta-alumina. Therefore, a hydrogen ion will be temporarily stored in palladium equipped with high hydrogen absorption capacity, and the condition that hydrogen ion concentration is very high will always be maintained for a part with the interior near the 2nd electrode (fuel electrode) 3 of the electrolyte layer 1. But, on the other hand, the part to which the metal membrane 4 was touched especially near the 1st electrode (oxygen pole) 2 will be in the condition that hydrogen ion concentration is very low, consequently will be produced inside the electrolyte layer 1, the difference of elevation, i.e., the shade difference, of very big hydrogen ion concentration.

[0031] In this fuel cell, this shade difference serves as motive power, and the rapid migration of a hydrogen ion of it is attained. Even when it is going to increase an output suddenly especially, it conforms to it and

only a required hydrogen ion can be quickly supplied to the 1st electrode 2 side. In other words, the situation which is not desirable that supply of a hydrogen ion to the oxygen pole does not fulfill demand does not arise, and this fuel cell demonstrates the responsibility excellent in any conditions.

[0032] And it consists of palladium-peta-alumina and the electrolyte layer 1 which is in the condition of having always become wet makes a hydrogen ion (in fact  $H_3O^+$ ) penetrate with this fuel cell with this compared with an old thing at very low about temperature, for example, 300-400 degrees C. Therefore, the time amount taken to carry out the temperature up of the electrolyte layer 1 to necessary temperature by the time starting becomes possible that is, is shortened remarkably, and startability improves sharply. Moreover, since it is not necessary to maintain the electrolyte layer 1 at an elevated temperature also during a generation of electrical energy with a natural thing, the energy which the incubation takes is slight. And since the heat-resistant function for bearing an elevated temperature is still more unnecessary, whole structure can be made very simple. Generally, rather than an old thing, the solid acid ghost mold fuel cell concerning this operation gestalt can operate at low temperature, and does various outstanding effectiveness so.

[0033]

[Effect of the Invention] Rather than an old thing, the fuel cell of the solid acid ghost mold concerning this invention can operate at low temperature, and improvement in responsibility or startability, energy saving, and the simplification of structure realize it.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

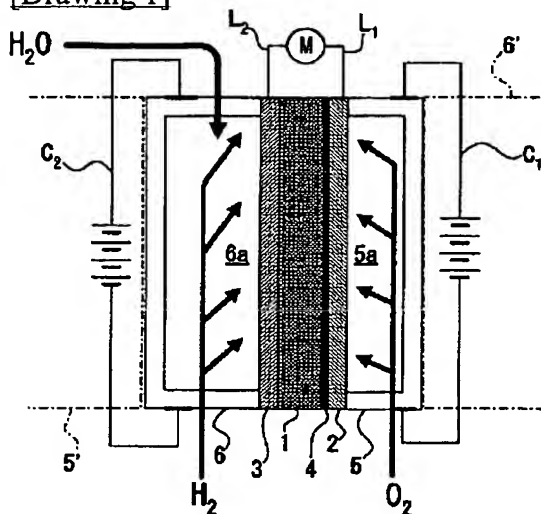
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DRAWINGS

---

[Drawing 1]



---

[Translation done.]



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-257450

(P2003-257450A)

(43) 公開日 平成15年9月12日 (2003.9.12)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード <sup>*</sup> (参考)
H 0 1 M	8/02	H 0 1 M 8/02	K 5 H 0 2 6
			B 5 H 0 2 7
			E
8/04		8/04	K
8/12		8/12	
審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 6 頁)			

(21) 出願番号 特願2002-56774(P2002-56774)

(22) 出願日 平成14年3月4日 (2002.3.4)

(71) 出願人 591214033

李 勤三

神奈川県三浦郡葉山町一色2495

(72) 発明者 李 勤三

神奈川県三浦郡葉山町一色2495

(72) 発明者 岡田 誠二

神奈川県横浜市都筑区富士見が丘29-21

(72) 発明者 加藤 泰三

神奈川県横浜市栄区本郷台2-22-13

(74) 代理人 100079005

弁理士 宇高 克己

Fターム(参考) 5H026 AA06 CX04 EE02 EE13

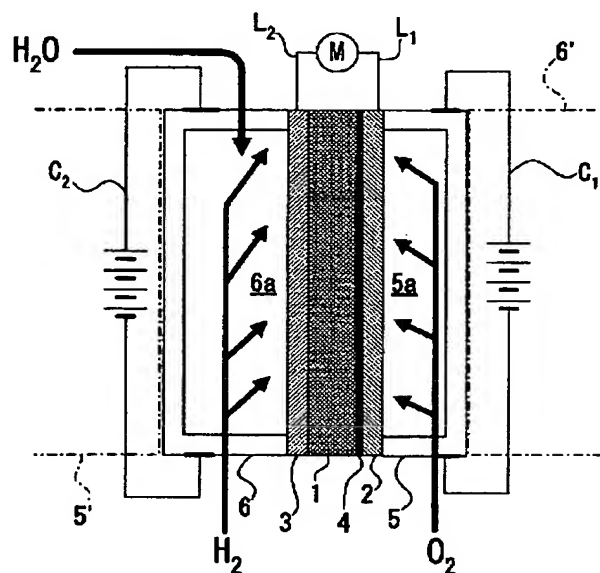
5H027 AA06

(54) 【発明の名称】 燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 これまでのものよりも低温で作動可能な、固体酸化物型の燃料電池を提供することである。

【解決手段】 電解質層1と、この電解質層1の一面側に設けられた第1の電極2と、この第1の電極2との間に、酸素を充填するための空隙5aが形成されるよう、第1の電極2を挟んで、電解質層1と対向するよう設けられた第1の支持体5と、電解質層1の他面側に設けられた、水をイオン化する機能を備える第2の電極3と、この第2の電極3との間に、水および水を充填するための空隙6aが形成されるよう、第2の電極3を挟んで、電解質層1と対向するよう設けられた第2の支持体6と、を具備し、更に電解質層1はパラジウム-ベータアルミナから構成されたものである燃料電池。



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】 電解質層と、

この電解質層の一面側に設けられた第1の電極と、  
この第1の電極との間に、酸素を充填するための空隙が  
形成されるよう、前記第1の電極を挟んで、前記電解質  
層と対向するよう設けられた第1の支持体と、  
前記電解質層の他面側に設けられた、水素をイオン化す  
る機能を備える第2の電極と、

この第2の電極との間に、水および水素を充填するた  
めの空隙が形成されるよう、前記第2の電極を挟んで、前  
記電解質層と対向するよう設けられた第2の支持体とを  
具備し、  
更に前記電解質層は、パラジウム-ベータアルミナから  
構成されたものであることを特徴とする燃料電池。

【請求項2】 電解質層は、ナトリウム-ベータアルミ  
ナの成分であるナトリウムを、電気分解法によってパラ  
ジウムに強制置換することで得たものであることを特徴  
とする請求項1に記載の燃料電池。

【請求項3】 パラジウムからなる金属膜が、電解質層  
と第1の電極との間に介在させられてなることを特徴と  
する請求項1または請求項2に記載の燃料電池。

【請求項4】 第1の支持体および/または第2の支持  
体は、電圧が印加されることによって発熱し、かつ、温  
度の上昇に伴って電気抵抗が増大する特性を備えたセラ  
ミックから構成されたものであることを特徴とする請  
求項1～請求項3のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項5】 水は、水蒸気の状態で、第2の支持体と  
第2の電極との間の空隙に充填されるよう構成されてな  
ることを特徴とする請求項1～請求項4のいずれかに記  
載の燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池、すなわ  
ち活物質を外から連続的に供給してやることで電力を  
発生するよう構成された電気化学的発電装置に関するも  
のである。

## 【0002】

【発明が解決しようとする課題】燃料電池は、大別し  
て、アルカリ型燃料電池(AFC)、リン酸型燃料電池  
(PAFC)、熔融炭酸塩型燃料電池(MCFC)、固  
体高分子型燃料電池(PEFC)、および固体酸化物型  
燃料電池(SOFC)の五つに分類される。このうち最  
後のものは、特に発電効率に優れるなどの理由から大き  
な注目を浴びており、本格的な実用化に向けての研究が  
鋭意推し進められている。

【0003】さて、この固体酸化物型燃料電池は、概し  
て言うと、固体酸化物である安定化ジルコニアなどの特  
殊なセラミックからなる電解質層を、左右から二つの  
電極で挟んだ構造となっている。この二つの電極の一  
方、すなわち燃料極に燃料である水素を、また、他方の

電極すなわち酸素極に酸化剤である酸素を供給してやる  
と、電極が有する触媒作用によって酸素がイオン化さ  
れ、この酸素イオンは、電解質層を透過して燃料極に至  
る。そして更に、酸素イオンはそこで水素イオンと出会  
って反応し水が生じる。この際、電子が燃料極から酸素  
極に移動するので電流が生じる。これが、固体酸化物型  
燃料電池が電力を発生させる仕組みである。

【0004】しかしながら、こうした固体酸化物型燃料  
電池(以下、単に燃料電池とも言う)には、次のような  
問題点があった。すなわち従来型の燃料電池は、作動温  
度が約900～1000℃と非常に高く、したがって始  
動可能となるまでには、つまり電解質層を所要の温度ま  
で昇温させるのには、かなりの時間が必要となる。ゆえ  
に、始動性が著しく悪い。また、当然のことながら発電  
中も常に電解質層をこの温度に保たねばならないので、  
膨大なエネルギーを浪費する。更に、高温に耐えられる  
ような耐熱構造を採用しなければならないので、全体と  
して非常に大掛かりなものとなる。

【0005】したがって、本発明が解決しようとする課  
題は、これまでのものよりも低温で作動可能な、固体酸  
化物型の燃料電池を提供することである。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】上記の課題を解決するた  
めには、電解質層として、これまでとは異なる材料から  
構成されたものが不可欠であると、本発明者は考えた。  
そして更に本発明者は、酸素イオンではなく、水素イオ  
ンが電解質層を透過するように構成することが必須であ  
るとの結論に到達した。

【0007】ところで、固体酸化物型の燃料電池におけ  
る電解質層としては、ベータアルミナと呼ばれる特殊な  
セラミック製のものが知られており、これを用いた場合  
には、電解質層内を酸素イオンではなく、陽イオン、た  
とえば水素イオンが透過するようになる。そのうえ、作  
動温度は安定化ジルコニアを用いた場合よりも、かなり  
低い値となる。このベータアルミナは、一般に、酸化ア  
ルミニウムと酸化ナトリウムとが化学結合した物質であ  
って、その具体的な化学式は、たとえば $3\text{Na}_2\text{O}-16\text{Al}_2\text{O}_3$ や $\text{Na}_2\text{O}-11\text{Al}_2\text{O}_3$ などである。  
ゆえに、普通は、ナトリウム-ベータアルミナと呼ばれ  
ている。

【0008】だが、このナトリウム-ベータアルミナか  
らなる電解質層を用いて構成された燃料電池にも、やは  
り不具合がある。すなわち、本構造が採用された燃料電  
池は、応答性に乏しい。これは、水素イオンがベータア  
ルミナ製の電解質層内を移動する速度が非常に遅いた  
め、言い換えれば、水素イオンが電解質層を透過するの  
に、かなりの時間を要するためである。それゆえ、出力  
を急に増大させようとしても、酸素極への水素イオンの  
供給が追いつかないことがあり、十分な応答性が発揮さ  
れない。

【0009】本発明者は、こうした実情に鑑みて更に研究を推し進め、その結果、電解質層として、パラジウム-ベータアルミナから構成されたものを用い、更に水素を水とともに燃料極に供給してやればよいことを突き止めた。このように構成すれば、水素イオンは、高い水素吸蔵能力を備えたパラジウムに一時的に蓄えられ、電解質層内部は、燃料極に近い部分ほど、水素イオン濃度の非常に高い状態が常に維持されることになる。しかしその一方で、酸素極近傍は水素イオン濃度が極めて低い状態となり、この結果、電解質層内部には非常に大きな水素イオン濃度の高低差（濃淡差）が生じることになる。

【0010】本構造が採用された燃料電池では、この濃淡差が原動力となり、水素イオンの急速な移動が可能となる。特に、出力を急に増大させようとした場合でも、それに即応して、必要なだけの水素イオンを酸素極側に急速供給できる。つまり、酸素極への水素イオンの供給が追いつかないといった好ましくない状況が生じることはなく、優れた応答性を発揮する。

【0011】そして、これとともに本構造の燃料電池では、パラジウム-ベータアルミナから構成された電解質層が、これまでのものに比べて非常に低い温度、たとえば300～400℃程度で、水素イオン（実際には $H_3O^+$ ）を透過させる。したがって、始動可能となるまでに、つまり電解質層を所要の温度まで昇温させるのに要する時間が著しく短縮され、始動性が大幅に向上する。また、言うまでもなく、発電中も電解質層を高温に保つ必要はないので、電解質層の保温に要するエネルギーは僅かである。そして更に、高温に耐えるための耐熱機能が不要なので、全体の構造を極めて簡素なものにすることができる。このように本発明に係る固体酸化物型燃料電池は、これまでのものよりも低温で作動可能であり、さまざまな優れた効果を奏する。

【0012】なお、本構造を採用した場合、電解質層の内部は常に水分子で飽和した状態となっており、言い換えれば、電解質層は常時湿った状態となっている。このため水素イオンは、電解質層内を水分子と結合した形で、すなわち $H_3O^+$ となって透過する。その後、この $H_3O^+$ は、酸素極側で再び水素イオンと水分子とに分離し、このうち前者が酸素と結合して水になる。そして、この過程で燃料極から酸素極に向かう電子の流れが生じる。つまり、燃料電池が電力を創出する。

【0013】本発明は、こうした知見に基づいてなされたものであって、上記の課題は、電解質層と、この電解質層の一面側に設けられた第1の電極と、この第1の電極との間に、酸素を充填するための空隙が形成されるよう、前記第1の電極を挟んで、前記電解質層と対向するよう設けられた第1の支持体と、前記電解質層の他面側に設けられた、水素をイオン化する機能を備える第2の電極と、この第2の電極との間に、水および水素を充填するための空隙が形成されるよう、前記第2の電極を挟

んで、前記電解質層と対向するよう設けられた第2の支持体とを具備し、更に前記電解質層は、パラジウム-ベータアルミナから構成されたものであることを特徴とする燃料電池によって解決される。

【0014】なお、本発明に係る燃料電池を構成する電解質層としては、特に、ナトリウム-ベータアルミナの成分であるナトリウムを、電気分解法によってパラジウムに強制置換することで得たものを用いることができる。また、作動効率、殊に応答性を更に向上させるため、本発明に係る燃料電池では、水素イオン濃度の高低差すなわち濃淡差を増大させるよう機能する、パラジウムからなる金属膜が、電解質層と第1の電極（酸素極）との間に介在させられてなることが好ましい。水素イオンは、このパラジウムからなる金属膜内を瞬時に透過するため、燃料電池の作動中、電解質層において同金属膜に接した部分は、常時、水素イオン濃度が極度に低い状態に保たれる。この結果、それを介在させていない場合よりも更に大きな濃淡差が生じることになる。

【0015】更に本発明の燃料電池においては、第1の支持体および／または第2の支持体は、電圧が印加されることによって発熱し、かつ、温度の上昇に伴って電気抵抗が増大する特性（正特性）を備えたセラミックス、たとえば $BaTiO_3$ 、 $ZrO_2$ 、 $SiC$ 、 $MoSi_2$ 、 $LaCrO_3$ などから構成されたものであることが好ましい。こうした材料を用いることで、第1の支持体および／または第2の支持体に、ヒーターとしての役割をさせることができ、これによって急速昇温システムができ上がる。すなわち燃料電池は、それ自身の内部に急速昇温システムを具備したものとなる。この結果、装置構造の更なる簡素化やコンパクト化が実現するだけでなく、装置が作動可能となる温度に達するまでの時間を短縮できる。加えて、本発明に係る燃料電池は、水が、水蒸気の状態、第2の支持体と第2の電極との間の空隙に充填されるよう構成されてなることが好ましい。

#### 【0016】

【発明の実施の形態】以下、図1を用いて、本発明の一実施形態を具体的に説明する。なお、同図は本実施形態に係る燃料電池の構造を示す概略断面図である。

【0017】本実施形態に係る燃料電池（以下、本燃料電池と言う）は、たとえば、化石燃料を燃焼させて動力を得る旧来の内燃機関に替わって、車両の動力源として用いられるものである。すなわち、本燃料電池（正確にはその集合体である燃料電池スタック）によって得られた電気エネルギーは、コントローラーなどを經由して、車輪駆動用のモーターに供給されることになる。なお、当然のことながら、本燃料電池の用途は、こうした用例に限定されるものではない。

【0018】本燃料電池は、活物質である水素および酸素を、外部から連続的に供給することで電力を発生させ

るよう組み立てられた電気化学的発電装置である。本燃料電池に供給される水素としては、メタノールやガソリン、LNG（液化天然ガス）、LPG（液化石油ガス）などの炭化水素系燃料を改質して得たものが挙げられる。但し、コストや扱いやすさ、安全性などの点を特に問わない場合には、液化状態あるいは圧搾状態で容器に充填された純粋な水素を使用してもよい。また、もう一方の活物質である酸素は、空気中のものを利用する。したがって正確に言うと、本燃料電池には、燃料である水素とともに空気が供給され、空気の成分である酸素が水素と化学反応することになる。但し、酸素についても、必要とあれば容器に充填された純粋なものを使用してもよい。

【0019】さて本燃料電池は、主要構成要素として電解質層1、この電解質層1の一面側に設けられた第1の電極2、同じくこの電解質層1の他面側に設けられた第2の電極3を有する。特に、電解質層1と第1の電極2との間には、パラジウムからなる金属膜4が介在させられている。

【0020】更に本燃料電池は、第1の支持体5および第2の支持体6を具備する。このうち第1の支持体5については、上記第1の電極2との間に、酸素を充填するための空隙5aが形成されるよう、第1の電極2を挟んで、電解質層1と対向するよう設けられている。一方、第2の支持体6については、上記第2の電極3との間に、水および水素を充填するための空隙6aが形成されるよう、第2の電極3を挟んで、電解質層1と対向するよう設けられている。

【0021】これら第1の支持体5および第2の支持体6は、ともに正特性セラミックス、具体的にはチタン酸バリウムなどから構成されたものである（むしろ、いずれか一方のみを正特性セラミックスから構成してもよい）。こうした材料からでき上がっている第1の支持体5および第2の支持体6は、それぞれ給電回路C<sub>1</sub>および給電回路C<sub>2</sub>によって電圧が印加されることで発熱し、かつ、温度の上昇に伴って電気抵抗が増大する。ゆえに、第1の支持体5および第2の支持体6の温度、したがって本燃料電池全体の温度は、ある範囲内でほぼ一定に保たれる。本実施形態では、第1の支持体5および第2の支持体6にヒーターとしての役割をも負わせているので、それらを正特性セラミックスから構成した。しかしながら、言うまでもなく第1の支持体5および第2の支持体6は、いかなる材料（絶縁材料）から構成されていてもよい。

【0022】さて、電解質層1は、水素イオンを図中、左から右へと透過させる役割を果たすが、ここではこの電解質層1として、パラジウム-ペーパールミナから構成されたものを用いている。更に詳しく言うと、本実施形態では、この電解質層1として、ごく一般的なナトリウム-ペーパールミナの成分であるナトリウムを、電気

分解法によってパラジウムに強制置換することで得たものを用いている。

【0023】次に、第1の電極2は、上述したように電解質層1と第1の支持体5との間に介在させられているが、更にそれには、化学反応により生じた電気エネルギーを取り出すためのリード線L<sub>1</sub>が接続されている。つまり、第1の電極2は負極として機能する。なお、本実施形態では、この第1の電極2を、白金を主要な成分とする多孔質材料から構成している。また、第2の電極3についても、白金を主要な成分とする多孔質材料から構成し、その内部を水素および水が自由に透過できるようにしている。そして、白金を主成分とすることからわかるように、第2の電極3は水素をイオン化する触媒機能を備える。更に第2の電極3には、化学反応により生じた電気エネルギーを取り出すためのリード線L<sub>2</sub>が接続される。つまり、第2の電極3は正極として機能する。

【0024】加えて、本実施形態では、水が、水蒸気の状態、第2の支持体6と第2の電極3との間の空隙6aに充填されるよう構成している。すなわち、本燃料電池には、図示していない加熱蒸散装置が接続されており、それを経由させることで、水を予め気化させて、すなわち水蒸気の状態として供給できるようにしている。

【0025】なお、実際には、多数の燃料電池（セル）が積重されるので、第1の支持体5は、図中、一点鎖線にて示す他の燃料電池が備える支持体（第2の支持体）6'と接した状態となる。一方、第2の支持体6も、図中、一点鎖線にて示す他の燃料電池が備える支持体（第1の支持体）5'に接した状態となる。

【0026】上記のごとく構成された本燃料電池は、次のように機能する。なお、活物質や水の供給に先立って、燃料電池全体を、殊に電解質層1を所定の温度、たとえば300～400℃まで昇温させる必要があるが、これには、上述した第1の支持体5および第2の支持体6のヒーター機能（急速昇温システム）が利用される。すなわち第1の支持体5および第2の支持体6に電圧を印加することで、それ自身を発熱させ、これによって、第1の支持体5および第2の支持体6に挟まれた電解質層1を所定温度まで加熱する。ただし、発電中もこの状態が常に維持される。

【0027】こうして準備作業が完了したならば、続いては、活物質である水素および酸素（実際には空気）と、水（水蒸気）を本燃料電池に供給する。このうち水素は、第2の電極3の有する触媒作用によってイオン化され、電解質層1に至るが、この電解質層1を構成するパラジウムによって、一時的にかなりの量が蓄えられる。また、同時に供給される水も、第2の電極3を透過して電解質層1に至り、そこに所定の量が保持される。つまり水は、電解質層1を適度に湿らせる役割を果たす。ひるがえって、水素は上述したように、第2の電極

3が有する触媒作用によってイオン化されるが、その際、水素は電子を放出する。そしてこれが、第2の電極3に接続されたリード線 $L_2$ を用いて構成される外部導通路(外部回路)に流れ込む。

【0028】ところで、第2の電極3から次々に水素イオンが供給されると、それは電解質層1内に予め蓄えられている水素イオンと置き換わっていく。言い換えれば、電解質層1は常時湿った状態となっているので、水素イオンは水分子と結合した形で、すなわち $H_3O^+$ となって電解質層1内を、更に続いて金属膜4を透過する。その後、この $H_3O^+$ は、第1の電極(酸素極)2側で、再び水素イオンと水分子とに分離する。そして、この水素イオンは酸素と出会い、更に、第1の電極2に接続されたリード線 $L_1$ を、すなわち上記外部導通路(外部回路)を経由して供給される電子が、これと結び付き、この結果、かなりの発熱を伴って水(水蒸気)が生じる。

【0029】こうした一連の化学反応して付随して、第2の電極3から第1の電極2に向かって、外部導通路を電子が移動するが、これは言うまでもなく外部導通路に電流が流れることを意味する。したがって本燃料電池(正確にはその集合体である燃料電池スタック)は、それに接続された電気機器(本実施形態ではモーター)Mを高いエネルギー効率で作動させる。

【0030】このように本実施形態では、電解質層1として、パラジウム-ベータアルミナから構成されたものを用い、更に水素を水とともに第2の電極3に供給するようにした。したがって水素イオンは、高い水素吸蔵能力を備えたパラジウムに一時的に蓄えられ、電解質層1の内部は、第2の電極(燃料極)3に近い部分ほど、水素イオン濃度が非常に高い状態が常に維持されることになる。だが、その一方で第1の電極(酸素極)2の近傍は、特に金属膜4に接した部分は、水素イオン濃度が極めて低い状態となり、この結果、電解質層1の内部には、非常に大きな水素イオン濃度の高低差つまり濃淡差が生じることになる。

【0031】本燃料電池では、この濃淡差が原動力となり、水素イオンの急速な移動が可能となる。特に、出力を急に増大させようとした場合でも、それに即応して、

必要なだけの水素イオンを第1の電極2側に急速に供給できる。言い換えれば、酸素極への水素イオンの供給が追いつかないといった好ましくない状況が生じることはなく、本燃料電池はいかなる条件でも優れた応答性を発揮する。

【0032】そしてこれとともに、本燃料電池では、パラジウム-ベータアルミナから構成され、常時湿った状態となっている電解質層1が、これまでのものに比べて非常に低い温度、たとえば300~400℃程度で、水素イオン(実際には $H_3O^+$ )を透過させる。したがって始動可能となるまでに、つまり電解質層1を所要の温度まで昇温させるのに要する時間が著しく短縮され、始動性が大幅に向上する。また、当然のことながら、発電中も電解質層1を高温に保つ必要はないので、その保温に要するエネルギーは僅かである。そして更に、高温に耐えるための耐熱機能が不要なので、全体構造を極めて簡素なものとすることができる。総じて、本実施形態に係る固体酸化物型燃料電池は、これまでのものよりも低温で作動可能であり、さまざまな優れた効果を奏する。

#### 【0033】

【発明の効果】本発明に係る固体酸化物型の燃料電池は、これまでのものよりも低温で作動可能であり、応答性や始動性の向上、省エネルギー、そして構造の簡素化が実現する。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施形態に係る燃料電池の構造を示す概略断面図

#### 【符号の説明】

1	電解質層
2	第1の電極(酸素極)
3	第2の電極(燃料極)
4	金属膜
5	第1の支持体
6	第2の支持体
5a, 6a	空隙
C1, C2	給電回路
L1, L2	リード線
M	電気機器(モーター)

【図1】

